©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Institut für Medizinische Physik der Universität Wien
Vorstand Prof. HAUER

Messungen der Radioaktivität des Luftstaubes im Raum von Wien und auf dem Jungfraujoch*

Von GERTRUD KECK

Mit 12 Abbildungen, davon 3 auf einer Tafel

(Vorgelegt in der Sitzung am 12. Mai 1960)

Einleitung

Die „physikalische Umwelt" des Menschen wird durch zivilisatorische Einflüsse dauernd und in zunehmendem Maße verändert. Ein Teil dieser physikalischen Umwelt ist durch Strahlungseinflüsse auf den Menschen gegeben, wobei bekanntlich die Radioaktivität des Luftstaubes, gegeben durch die sich an Staubteilchen anlagernden Folgeprodukte des Radiums und Thoriums eine seit eh und je bestehende Strahlungsbelastung des Menschen in der Größenordnung von $2 \cdot 10^{-10}$ Curie/m^3 [1] darstellt. Durch Atombombenversuche und auch auf andere Weise (z. B. Reaktorunfall) gelangen künstliche radioaktive Isotope in die Atmosphäre und dadurch ist die Radioaktivität des Luftstaubes seit einigen Jahren sowohl in bezug auf Intensität als auch in bezug auf Zusammensetzung und Verteilung in ständiger Veränderung begriffen. An zahlreichen Stellen der Erde wird die langlebige Aktivität des Luftstaubes dauernd gemessen, in Wien insbesondere an der Zentralanstalt für

* Diese Untersuchung wurde teilweise in der „Hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch" ausgeführt, ein Teil der Messungen wurde auf dem Kirchturm des Kirchleins auf dem Leopoldsberg gemacht. Für die Bereitstellung dieser Beobachtungsstellen sei hier der Österreichischen Akademie der Wissenschaften und dem Stift Klosterneuburg herzlich gedankt.

[1] RAJEFSKY, Wissenschaftliche Grundlagen des Strahlenschutzes, Seite 247.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Meteorologie[2–5], die Messungen von Deutschland werden vom „Sonderausschuß Radioaktivität" zusammengestellt und veröffentlicht[6–7]. Neben der globalen Messung der Aktivität kommt der Analyse ihrer chemischen Zusammensetzung, der Feststellung der Halbwertszeit und der Größenverteilung der Aktivität eine besondere Bedeutung zu, da nur durch Kenntnis aller dieser Faktoren die biologischen Wirkungen abgeschätzt werden können.

Wir haben vom obigen Institut aus seit April 1958 die Aktivität des Luftstaubes an einer Stelle mitten in Wien (Währinger Straße, 1. Stock), am Rande der Stadt in 500 m Höhe (Kirchturm der Kirche auf dem Leopoldsberg) und im Hochgebirge in der „Hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch" (Meteorologische Station auf der Sphinx, 3540 m) die langlebige Aktivität des Luftstaubes gemessen, Autoradiogramme gemacht, Abklingkurven zur Bestimmung des Explosionsdatums aufgenommen und β- und γ-Strahlenanalysen durchgeführt.

Meßmethode

Zur Anreicherung der Aktivität wurde in der üblichen Weise mit einem Staubprobensammler der Firma Fleming Radio Developments Ltd. (Dust Sampling Unit Type 1355 B) atmosphärische Luft durch Zellulose-Faserfilter (WHATMAN 501) gesaugt. Die beaufschlagte Fläche hat einen Durchmesser von 5 cm, die durchgesaugte Luftmenge betrug bei Saugzeiten von 12 Stunden etwa 70 m^3. Sie wurde mit einem eingebauten Anemometer gemessen. In großer Höhe (HFS Jungfraujoch) mußte auf Vereisung des Filters oder der nach außen ragenden Ansaugeöffnung auch im Sommer geachtet werden.

Die Staubmenge wurde fallweise dadurch bestimmt, daß das Filterblättchen vor und nach der Beaufschlagung gewogen wurde. Dabei wurde darauf geachtet, daß das Filter einige Stunden vor der Wägung in der Waage bei konstanter Feuchtigkeit auf-

[2] STEINHAUSER F., Wetter und Leben, Jahrgang 11, Heft 2—4, 25.

[3] STEINHAUSER F., Archiv für Meteorologie, Geophysik und Bioklimatologie. Serie A, Band 11, 2. Heft, 1959.

[4] STEINHAUSER F., Mitteilungen der österreichischen Sanitätsverwaltung, 60. Jahrgang, Heft 5, 1959.

[5] STEINHAUSER F., Mitteilungen der österreichischen Sanitätsverwaltung, 60. Jahrgang, Heft 11, 1959.

[6] Sonderausschuß Radioaktivität. Bundesrepublik Deutschland, Erster Bericht, Januar 1958, Georg Thieme Verlag, Stuttgart.

[7] Sonderausschuß Radioaktivität, Bundesrepublik Deutschland, Zweiter Bericht, März 1959, Georg Thieme Verlag, Stuttgart.

bewahrt wurde. Die Reproduzierbarkeit der Wägung war etwa 0,3 mg, d. h. etwa 3—5 % des Staubgewichtes.

Von den beaufschlagten Filterblättchen wurde sofort ein Autoradiogramm angefertigt, indem das Filter mit Klammern auf einen Röntgenfilm (Kodak X-ray Film) angeheftet und zwischen Schaumgummieinlagen in eine Kartonschachtel gebracht wurde. Die Expositionszeiten betrugen zunächst 2 Tage, wurden dann (April 1959) auf 7 Tage erhöht. Außerdem wurden je nach den Umständen auch wesentlich länger oder kürzer (minimal $^1/_2$ Stunde) exponierte Radiogramme gemacht. Die Schwärzung der Röntgenfilme rührt nur von der langlebigen Aktivität her, die rasch abklingende natürliche Aktivität gibt bei den auf unseren Filtern vorhandenen Mengen keine Schwärzung.

Nach Abklingen der kurzlebigen Aktivität, später einheitlich nach 7 Tagen, erfolgte die Messung der langlebigen β-Aktivität der Filterblättchen mit einem Glockenzählrohr der Firma Mullard (D 34) mit Glimmerfenster der Fensterstärke von 1,4 bis 2 mg/cm². Das Zählrohr ist durch ein Bleikastell von 3 cm Wandstärke abgeschirmt. Der mittlere Fehler der einzelnen Messung betrug ± 5% da mit Impulsvorwahl von 400 Impulsen gearbeitet wurde. Ebenso wurde der Nulleffekt auf ± 5% bestimmt. Zur Angabe der β-Aktivität in Curie war die Eichung des Zählers notwendig. Wir berechneten zunächst die Geometrie des Zählrohres unter den gegebenen Versuchsbedingungen aus der Formel[8]

$$G = 0{,}5\left[1 - \frac{1}{(1+\beta)^{1/2}} - \frac{3}{8}\frac{\beta\gamma}{(1+\beta)^{5/2}} - \gamma^2\left(-\frac{5}{16}\frac{\beta}{(1+\beta)^{7/2}} + \frac{35}{64}\frac{\beta^2}{(1+\beta)^{9/2}}\right) - \right.$$
$$\left. - \gamma^3\left(\frac{35}{128}\frac{\beta}{(1+\beta)^{9/2}} - \frac{315}{256}\frac{\beta^2}{(1+\beta)^{11/2}} + \frac{1155}{1024}\frac{\beta^3}{(1+\beta)^{13/2}}\right)\right]$$

mit 2b = Fensterdurchmesser
a = Abstand des Präparates vom Fenster
2c = Präparatdurchmesser

$$\text{und} \quad \beta = \frac{b^2}{a^2} \quad \gamma^2 = \frac{c^2}{a^2}$$

Dabei ergab sich für den praktisch öfters vorkommenden Fall eines punktförmigen Strahlers („heißes Teilchen") ein Wirkungsgrad von 36%, für ein flächenhaft verteiltes Präparat, bei dem die

[8] Fünfer-Neuert, Zählrohre und Szintillationszähler, Verlag G. Braun, Karlsruhe, II. Auflage.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Präparatgröße gleich der Fenstergröße ist, wird im Abstand von ebenfalls 0,4 cm der Wirkungsgrad 24%.

Es treten außer den Verlusten durch die Geometrie auch noch Verluste durch Absorption usw. ein (siehe FÜNFER-NEUERT, Seite 194). Wir eichten daher mit der vom Sonderausschuß Radioaktivität[9] vorgeschlagenen Eichsubstanz K^{40}. Für flächenhafte Verteilung des Präparates auf dem Filterblättchen erhielten wir einen Wirkungsgrad des Glockenzählers von 20%, was unter Berücksichtigung der oben genannten Verluste mit der Rechnung verträglich ist. Da die Maximalenergie des K^{40} größer ist als die der von uns gemessenen Proben, wird die Probe sicher noch unterbewertet werden. Unter Berücksichtigung des Wirkungsgrades des Zählrohres (20%), des gemessenen Filteranteiles (36%), des auf $\pm 10\%$ genau bestimmten Volumens wurde aus der um den Nulleffekt verringerten Impulszahl (beides gemessen auf $\pm 5\%$) I die Aktivität in 10^{-13} μ Curie/cm³ bestimmt, mit Hilfe der Formel:

$$\frac{I \cdot 60}{v_m^{\,3}}\, 10^{-13}$$

Diese Bestimmung der β-Aktivität ist infolge der oben angegebenen Unsicherheiten und Fehler nicht genau, doch treten durch die ungleichmäßige Verteilung der Aktivität grundsätzlich noch viel stärkere Schwankungen auf, so daß eine größere Meßgenauigkeit praktisch wenig Bedeutung hätte.

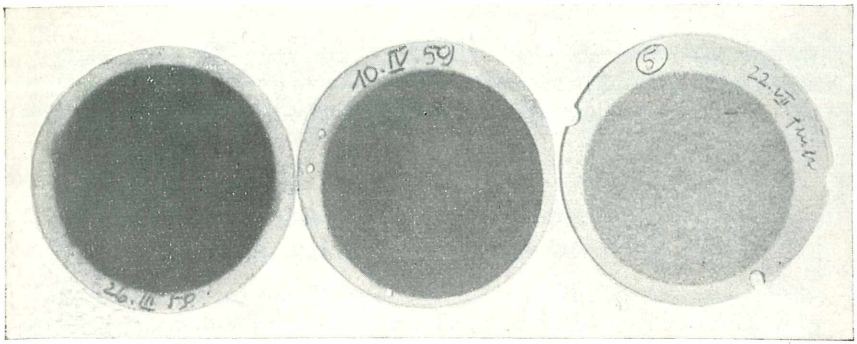
Zur Bestimmung des Explosionsdatums und damit des Alters des langlebigen Aerosoles wurde von einzelnen Proben über einen Zeitraum von einigen Monaten die β-Aktivität bestimmt. Aus der sich ergebenden Abklingkurve wurde nach WAY K. und WIGNER E. P.[10] das Datum der Explosion bestimmt.

Weiters wurden von Filterteilen mit besonders starker Aktivität („heißen Teilchen") oder auch von ganzen Filtern mit einem 1-Kanal-Szintilationsspektrometer (Nuclear Chicago) Strahlenanalysen durchgeführt. Für β-Analysen verwendeten wir als Szintillator einen Plastikkristall von 3,8 cm Durchmesser und wir brachten zur Vermeidung von Absorption das zu analysierende Filter direkt vor den Kristall. Seit einiger Zeit steht uns ein NaJ-Bohrlochkristall von 5 cm Durchmesser zur Verfügung, so daß wir auch γ-Spektren aufnehmen können.

[9] Sonderausschuß Radioaktivität, Bundesrepublik Deutschland, Zweiter Bericht, März 1959.

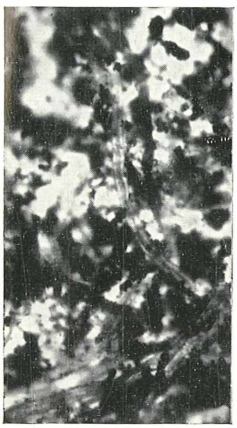
[10] WAY K. und WIGNER E. P., Phys. Rev. 73 (1948).

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

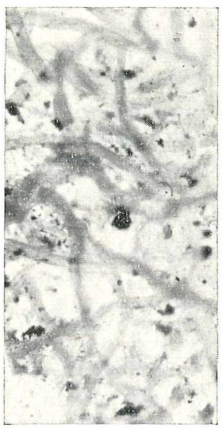


a b c

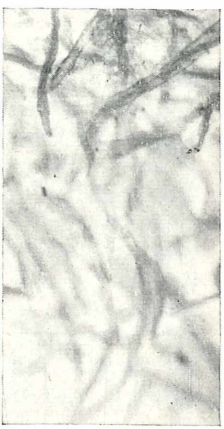
Abb. 1. Staubproben angesaugt: a) Währinger Straße, b) Leopoldsberg, c) Jungfraujoch (Sommer).



a



b



c

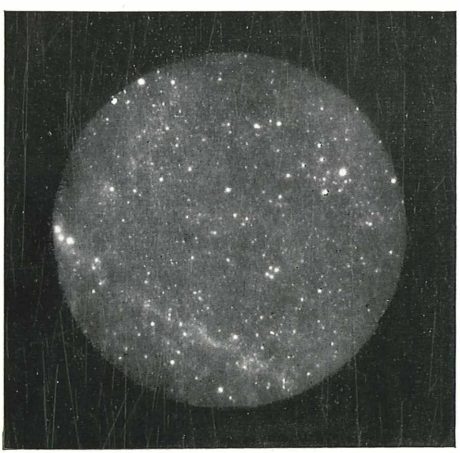


Abb. 2. Mikroaufnahmen von beaufschlagten Filtern: a) Währinger Straße, b) Leopoldsberg, c) Jungfraujoch.

Abb. 3. Autoradiogramm von beaufschlagtem Filter, nach 2monatiger Expositionszeit.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Neben der Messung der Aktivität der Filterblättchen wurde die Qualität des Staubes von den drei verschiedenen Beobachtungsstationen mit Lupe und Mikroskop untersucht.

Beobachtungen zur Zusammensetzung des Staubes in bezug auf die langlebige Aktivität

Bekanntlich ist die Menge und Beschaffenheit des atmosphärischen Aerosols je nach dem Beobachtungsort sehr verschieden. Filter mit an verschiedenen Orten gesammelten Staubproben weisen demnach auch bei annähernd gleichem durchgesaugtem Luftvolumen eine sehr verschiedene Schwärzung auf, wie das Abb. 1a bis 1c zeigen. (Im Winter zeigen die Filter der HFS J überhaupt keine merkliche Graufärbung.)

Das mikroskopische Bild solcher Filter läßt erkennen, daß der Hauptanteil des Großstadtstaubes aus Ruß besteht (Abb. 2a), auf der Beobachtungsstation Leopoldsberg ist der Rußgehalt geringer (Abb. 2b), während auf dem Jungfraujoch kein Ruß und nur wenig mikroskopisch sichtbare Staubteilchen sind (Abb. 2c). Der Staubgehalt der Großstadtluft betrug etwa 0,2—0,8 mg/m^3, während auf dem Jungfraujoch im Sommer weniger als 0,2 mg/m^3 gemessen wurde. Der Unterschied im Staubgewicht ist nicht so groß wie nach den Mikroaufnahmen zu erwarten wäre, was jedoch durch größeres spez. Gewicht des Staubes auf dem Jungfraujoch zu erklären ist. Fast alle diese Filter weisen eine (je nach dem Zeitpunkt der Messung verschieden starke) langlebige Aktivität auf. Damit ist demnach dem zeitlich und örtlich sehr unterschiedlichen Aerosol immer ein langlebiger Aerosolanteil beigemischt.

Im folgenden seien die Werte dieser langlebigen Aktivität des abgefilterten Staubes, gemessen an den 3 Beobachtungsorten, wiedergegeben. Von Beobachtungsbeginn an (April 1958) bis Ende 1958 wurde auch in Wien besonders das Auftreten stark aktiver Teilchen[11], [12] (mit einer Aktivität von über 10^{-10} Curie, später als „heiße Teilchen" bezeichnet[13]) beobachtet. Außerdem wurde bei allen Proben dieser Zeit langlebige Aktivität festgestellt. Tabelle 1 gibt die Anzahl der Proben mit heißen Teilchen wieder, abgefiltert

[11] Hauer F. und Keck G., Naturwiss. 1958, Heft 24, S. 627, 45. Jahrgang.

[12] Schedling J. A. und Müller W. A., Atomkernenergie, 4. Jahrg. 1959, Heft 2.

[13] Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft, Heft 12.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

in der Währinger Straße, wobei die einzelnen Proben einem durchgesaugten Luftvolumen von etwa 10—20 m³ entsprachen.

Tabelle 1

Auftreten der „heißen Teilchen" im Jahre 1958 in Wien-Währinger Straße

	Anzahl der Proben	davon mit stark aktiven Teilchen
April, II. Hälfte	7	2 (ein „heißes Teilchen" mit 3.10^{-10} Curie)
Mai I	11	2
Mai II	5	0
Juni I	2	1
August II	4	0
September I	6	0
September II	8	0
Oktober I	7	0
Oktober II	9	4

Vom Jahr 1959 an wurde die langlebige β-Aktivität der Filter nach der eingangs beschriebenen Versuchsmethodik bestimmt und die Aktivität in 10^{-13} μ Curie/cm³ berechnet. Tabelle 2 gibt die Tageswerte an, die wechselnd an den 3 Beobachtungsorten erhalten wurden.

Diese Zahlenwerte geben keine Auskunft über die Verteilung der Aktivität auf dem Staub. Diese Verteilung wurde durch die Autoradiogramme sichtbar gemacht. Dabei zeigte sich, daß die im Frühjahr und Herbst 1958 aufgetretenen hohen Werte der Aktivität auf einzelne stark aktive Teilchen zurückzuführen waren. Diese geben auf dem Röntgenfilm schon nach weniger als einer Stunde einen deutlichen Schwärzungspunkt, während die übrigen Teile des Filters auch nach einer Woche Exposition keine deutliche Schwärzung zeigten. Die Autoradiogramme des Jahres 1959 sind zeitlich sehr verschieden geschwärzt. Zunächst traten noch mehrmals einzelne Schwärzungspunkte auf, die jedoch Teilchen von nicht mehr so großer Intensität zugeordnet werden können wie im Jahre 1958. Selten kommen noch „heiße Teilchen" vor (30. I. 1959). Diese Verschiebung gegen mehrere aber schwächer aktive Teilchen trat im Februar noch stärker auf, „heiße Teilchen" wurden ab diesem Zeitpunkt von uns überhaupt nicht mehr gefunden. Wir begannen daher einzelne Radiogramme auch wesentlich länger zu exponieren und fanden dabei anfangs März, daß bei Expositions-

zeiten von fast 2 Monaten außer einigen starken Schwärzungspunkten eine Vielzahl von schwachen geschwärzten Stellen auftritt, die die Form des bestaubten Anteiles des Filters genau abzeichnen und auch Stellen mit stärkeren Staubansammlungen auf dem Filter auf dem Autoradiogramm sichtbar machen (Abb. 3), woraus man sieht, daß eine schwache Aktivität dem Staub recht gleichmäßig beigemischt war. Diese Erscheinung trat in der folgenden Zeit immer mehr in den Vordergrund und erreichte Ende April und Anfang Mai 1959 ihren Höhepunkt. Damals wurde diese Schwärzung im Autoradiogramm auch schon bei einer Expositionszeit von 7 Tagen sehr deutlich sichtbar. Die Einzelpunkte mit starker Schwärzung traten immer mehr zurück, sie wurden Mitte Mai schon wesentlich seltener, und gegen Ende Mai nahmen sowohl die Gesamtschwärzung des Filters als auch die Einzelteilchen ab. Mitte Juni war fast nur mehr die Gesamtschwärzung (die sich jedoch immer in sehr viele Einzelschwärzungen aufzulösen scheint) zu sehen und auch diese wurde gegen Ende so schwach, daß eine Expositionszeit von 7 Tagen zu ihrer Sichtbarmachung kaum mehr ausreichte. Dabei zeigte sich kein Unterschied während der ganzen Beobachtungszeit zwischen den in der Währinger Straße und den auf dem Leopoldsberg erhaltenen Staubproben. Im Juli und August wurden die Staubproben von 3500 m Höhe (Jungfraujoch) autoradiographiert. In guter Übereinstimmung mit den in Wien erhaltenen Werten zeigte sich auch dort bei einer Expositionszeit von 7 Tagen eine nur sehr schwache Schwärzung. Erst bei 45 Tagen Expositionszeit tritt diese etwas deutlicher hervor, mit einigen überlagerten etwas stärkeren Schwärzungspunkten. Es ist also zu diesem Zeitpunkt auch in der hohen Schicht die Aktivität sehr gering und recht gleichmäßig auf den Staub verteilt.

Es war nun auch noch von Interesse, von wann dieses so unterschiedlich verteilte radioaktive Aerosol stammt, und wir bestimmten daher bei einzelnen Proben das Datum der Explosion. Dazu wurde, wie eingangs gesagt, von einzelnen Proben laufend die β-Aktivität bestimmt und aus etwa 25 Einzelmessungen die Abfallskurve aufgenommen für ein „heißes Teilchen" (abgeschieden am 30. I. 1959, für ein gesamtes Filter vom 1. IV. 1959, und für ein gesamtes Filter vom 1. V. 1959). Nach Way und Wigner[10] geht der Zerfall des Gemisches der radioaktiven Spaltprodukte nach der Formel

$$A = A_0 \cdot t^{-(1-x)}$$

vor sich

A Aktivität zur Zeit t

A_0 Aktivität zur Zeit t_0

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Tabelle 2

Tageswerte der langlebigen β-Aktivität des Luftstaubes in 10^{-13} μ Curie/cm³,

	1959 Jänner	Februar	März	April	Mai	Juni	Juli
1				32	94	42	
2		8		56		34	
3		18	52	37		25	
4		17	82	43	70	15	
5		21	32		50	20	
6		21		80	73	27	
7		39	39	29	115		
8					77	28	
9		29	52	39			
10			47	19		39	
11			35	20	57		
12		115			82		
13		53		23	51		
14		80			39		
15					46[1]	37	
16	22	58		50		56	
17	115	16	84	49		30	
18		35		17		22	
19	20	42			45[1]	39	
20	34			45	37[1]		7
21	49	68			25[1]		10
22	Teilchen			52	32	22	11
23	69	60		45	62	41	12
24	Teilchen	32	62	11		30	6
25		46		27	40	22	5
26	13		23	27	56	27[2]	5
27	12	66		21	40		5
28	79	49		45			
29	40			58	52	13[2]	
30	*{ 80 Teilchen			60		7	4
31	51		48				2

* Am 30. I. war auf dem Filter ein „heißes Teilchen" von $0{,}7 \cdot 10^{-10}$ Curie der angegebene

[1] Schwarzband-Filter.
[2] Delbag: Mikrosorbanfilter.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

gemessen in Währingerstraße [ ], Leopoldsberg, Jungfraujoch [ ]

August	September	Oktober	Nov.	Dez.	1960 Jänner	Februar	März
4				1,3			
4		1,5					2,0
4			0				
3							1,1
5		0,5	0			0	1
					0		
		1,3					
				0,4		1,7	
	4		0				
							1
		1,0				1,0	
		1,9				1,7	
	2					1,5	0
	3	2,0			0,6	1,6	
	2					1,2	
	0		1,2			0	0,6
						0,3	
		1,6				0	
	4					0	0 0
	2				1	0	
				0		0	
						0,4	
			0			0,5	
						0	
		1,7				0	
	0,7						
						1,0	
		0,3		0			

Wert von $80 \cdot 10^{-13}$ μ Curie/cm³ stammte von dem Restfilter.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

x ist in der Größenordnung von 0,1 bis 0,2, so daß man annähernd mit der Formel

$$A = A_0 \cdot t^{-1} \text{ rechnen kann.}$$

In Abb. 4 wurden die reziproken Werte der Impulse pro Minute

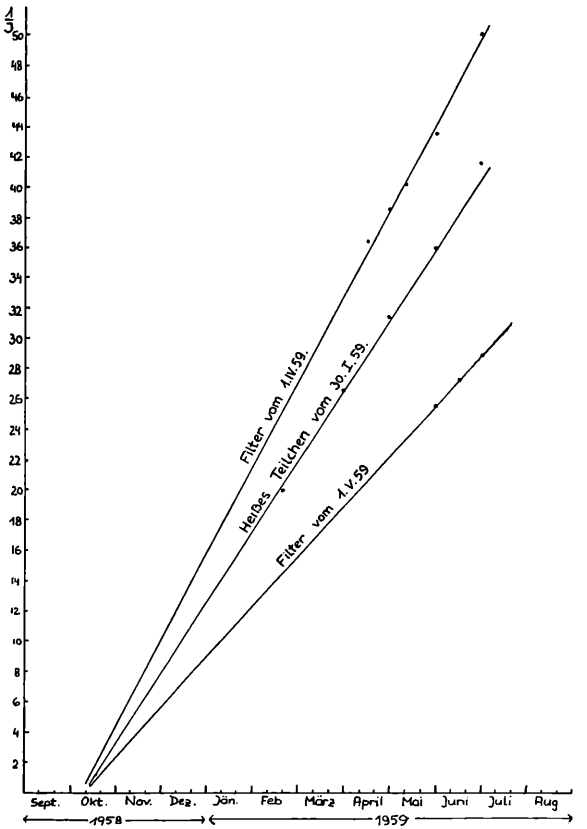


Abb. 4. Zur Bestimmung des Datums der Atombombenexplosion, durch die die β-Aktivität des Staubes verursacht wurde.

($\frac{1}{I}$), berechnet aus den 3 Abfallskurven, als Funktion des Datums aufgetragen. Alle 3 Kurven haben ihren Schnittpunkt mit der x-Achse, der ja das Explosionsdatum angibt, annähernd gleich, und zwar in der ersten Oktoberhälfte 1958.

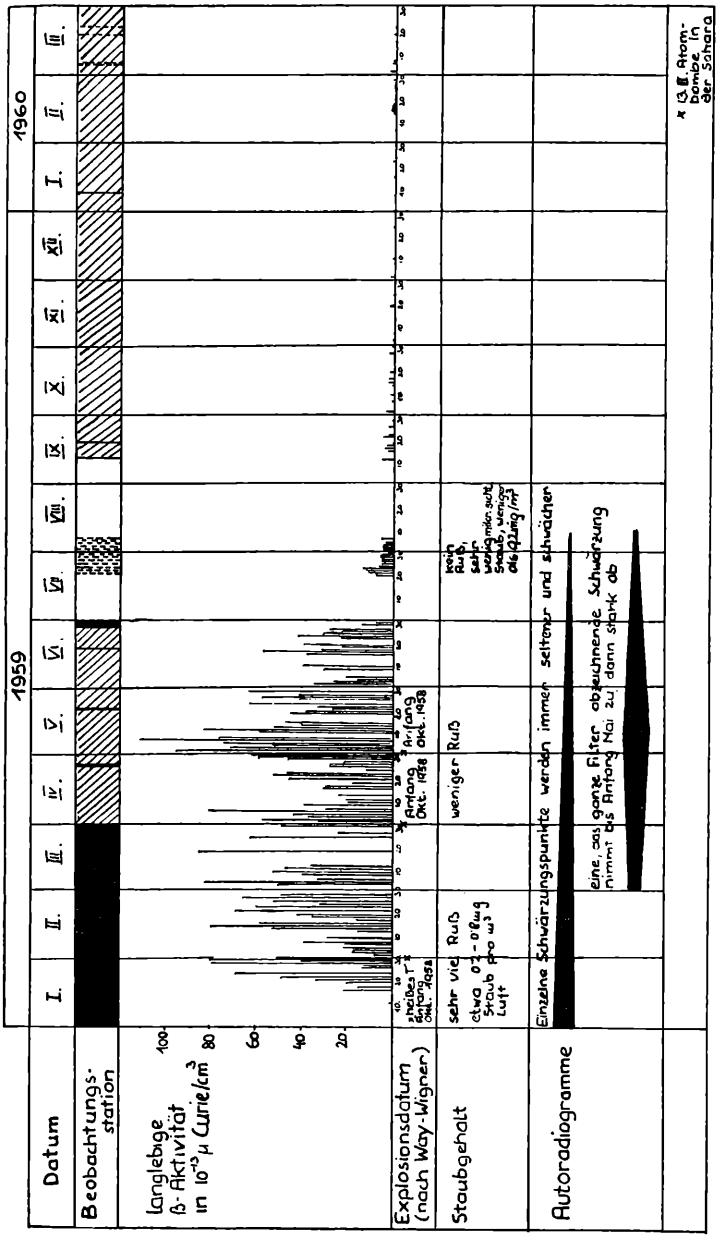

1959
1960
Datum
I. II. III. IV. V. VI. VII. VIII. IX. X. XI. XII. I. II. III.
Beobachtungs-station
Langlebige β-Aktivität in 10^{-13} μ Curie/cm³
100
80
60
40
20
Explosionsdatum (nach Way-Wigner)
Staubgehalt
sehr viel Ruß
etwa 0.2 - 0.8 mg Staub pro m³ Luft
weniger Ruß
Anfang Okt. 1958
Anfang Okt. 1958
kein Ruß, sehr wenig mikr. sicht Staub, weniger als 0.2 mg/m³
Autoradiogramme
Einzelne Schwärzungspunkte werden immer seltener und schwächer
eine, das ganze Filter abzeichnende Schwärzung nimmt bis Anfang Mai zu, dann stark ab
* 13. III. Atom-bombe in der Sahara
Währingerstraße
Leopoldsberg
Jungfraujoch

Abb. 5.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Abb. 5 gibt die Meßergebnisse bezüglich Größe der β-Aktivität, ihre Verteilung auf den Filtern, das Alter des radioaktiven Aerosoles sowie die Staubqualität und Quantität für die 3 Beobachtungsstationen in übersichtlicher Form wieder.

Dabei zeigt sich, daß die langlebige β-Aktivität des Luftstaubes im Jahre 1959 im wesentlichen (soweit aus den einzelnen Proben geschlossen werden kann) von den Atombombenexplosionen im Herbst 1958 stammt. Im Jahre 1959 fand keine Explosion statt, von früheren Versuchen konnten wir keine langlebige Aktivität feststellen. Das Beobachtungsjahr 1959 gibt somit ein Bild, wie die Aktivität, die zu einem bestimmten Zeitpunkt (Oktober 1958) in die Atmosphäre gelangte, aus dieser wieder ausgeschieden wird. Die Autoradiogramme ergeben eine zeitlich sehr unterschiedliche Verteilung der Aktivität, die jedoch so charakterisiert werden kann, daß zunächst Teilchen stärkerer Aktivität vorhanden waren, während mit Fortschreiten des Jahres sehr, sehr viele schwachaktive Teilchen auftraten. Die Gesamtaktivität nahm bis Mitte Mai zu und von da an stark ab, um in den letzten Monaten des Jahres Schwankungen um den Nullwert zu ergeben, die jedoch schon innerhalb der Meßgenauigkeit lagen. Die Tageswerte der langlebigen β-Aktivität in $10^{-13}\mu$ Curie/cm³ schwanken in der Zeit der starkaktiven Teilchen sehr, da ja ein einzelnes Teilchen einen beträchtlichen Teil der gesamten Aktivität des Filters aufweisen kann und daher die Angaben in $10^{-13}\mu$ Curie/cm³ nur vom Zufall abhängen, ob starkaktive Teilchen auf das Filter gelangen oder nicht. Es kommt in diesen Zeiten der Angabe in $10^{-13}\mu$ Curie/cm³ weniger biologische Bedeutung zu, da ja sicher nur einige Lebewesen diese besonders starkaktiven Teilchen einatmen, die anderen hingegen ganz normalen aktiven Luftstaub in die Lunge bekommen. Mit Auftreten der vielen schwachaktiven Teilchen schwanken die täglichen Aktivitätswerte viel weniger.

Ein Vergleich der Aktivität des Staubes in tiefen Luftschichten (Raum von Wien, 100—400 m) mit der Aktivität gemessen auf dem Jungfraujoch, 3500 m, zeigt trotz des sehr verschiedenen Staubgehaltes keine großen Verschiedenheiten. Die Ergebnisse vom Jungfraujoch passen zu den Verlauf der, wenn auch nicht gleichzeitig, so doch in diesen Wochen aufgenommenen Messungen von Wien und stimmen auch mit den gleichzeitig in der Zentralanstalt für Meteorologie in Wien ausgeführten Messungen überein. Auch die Autoradiogramme des Luftstaubes vom Jungfraujoch zeigen eine Aktivitätsverteilung wie vorher in Wien.

Aus diesen Messungen ergibt sich die Frage: Wie ist das langlebige radioaktive Aerosol dem nichtaktiven Aerosol beigemischt?

Grundsätzlich kann der Staub unserer Atemluft (in bezug auf die langlebige Aktivität) zusammengesetzt sein aus:

1. Teilchen, die aus inaktivem Material bestehen,
2. Teilchen, die aus aktivem Material bestehen,
3. Teilchen, die aus aktivem Material mit inaktivem Zerfallsprodukt bestehen,
4. Teilchen, die aus aktivem Material bestehen und an inaktive Träger angelagert sind.

Welche von diesen Möglichkeiten sind nun wirklich vorhanden? Eine Beobachtung im Mikroskop gestattet nicht, unter den Millionen auf dem Filter sitzenden Staubteilchen die aktiven zu erkennen und zu sehen, ob sie auf Trägern sitzen usw. Es ist nicht einmal gelungen, die durch ihre starke Aktivität leichter zu lokalisierenden „heißen Teilchen" eindeutig im Mikroskop zu identifizieren und ihre Größe zu bestimmen. Wir haben dies durch fortgesetzte Teilung und Lösung der Filterfasern zu erreichen versucht, doch waren immer noch viele inaktive Teilchen neben dem aktiven Teilchen im Gesichtsfeld des Mikroskopes. SCHEDLING und MÜLLER[14] versuchten auf ähnliche Arten eine Größenbestimmung der „heißen Teilchen" durchzuführen und gaben an, daß kein Teilchen, das größer war als 2 Mikron, gleichzeitig mit dem „heißen Teilchen" im Gesichtsfeld des Mikroskopes lag, so daß dieser Wert eine obere Grenze für die Größe dieses „heißen Teilchens" darstellt. Die Sichtbarmachung von sehr starkaktiven großen Teilchen, wie sie in unmittelbarer Umgebung einer Atombombenexplosion auftreten, gelang[15]. Die Autoradiographien zeigen wohl viel über die Verteilung der Aktivität auf dem Filter, aber sie lassen die Größe der Teilchen in keiner Weise erkennen. Starke Schwärzungspunkte können auch von sehr kleinen Teilchen herrühren. Aus den vorher angegebenen Messungen läßt sich jedoch einiges über die Zusammensetzung des Staubes aussagen. Sicher sind 1. im Großstadtstaub viele inaktive Teilchen vorhanden, denn die Aktivität in 3500 m (Jungfraujoch) und in Wien ist annähernd gleich, während in Wien wesentlich mehr Staub vorhanden ist (Mikrophotos Abb. 2). Nur ein Bruchteil des Großstadtstaubes besteht demnach aus aktiven Teilchen. Teilchen, die nur aus aktivem Material bestehen (2), können bei uns kaum auftreten, da während der „Reise" der Teilchen vom Ort der Explosion bis zu uns inaktives Zerfallsprodukt entstehen muß.

[14] SCHEDLING J. A. und MÜLLER W. A., Sitzungsber. d. Österr. Akad. der Wiss., Mathem.-naturw. Klasse, Abteilung II, 168. Bd., 1. bis 4. Heft, 1959.

[15] Sonderausschuß Radioaktivität, Kolloquium über radioaktive Partikel, Gersbach und Sohn Verlag GmbH, Braunschweig 1959.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Ob die aktiven Teilchen, die mit ihrem inaktiven Zerfallsprodukt auftreten mit oder ohne Träger von uns eingeatmet werden, ist kaum feststellbar und wahrscheinlich auch variabel. Trotzdem käme gerade dieser Frage in bezug auf das Verhalten der Teilchen in der Lunge große Bedeutung zu.

Gegen Ende des Jahres 1959 und auch im Jänner, Februar und März 1960 hat die langlebige Aktivität des in der Luft schwebenden Staubes fast völlig den Nullwert erreicht. Die Explosion einer französischen A-Bombe am 13. II. 1960 in der Sahara hat hier in Wien die Aktivität des Luftstaubes nicht geändert und auch Proben von höheren Luftschichten (Jungfraujoch) zeigten keine erhöhte langlebige β-Aktivität. Das bedeutet aber nicht, daß nun keine langlebige, von Atombombenversuchen herrührende Aktivität mehr existiert. Dies zeigt schon eine Messung der Filter des vergangenen Jahres, die alle noch eine beträchtliche Aktivität aufweisen und genauso muß sie ja noch in der Natur vorhanden sein. Eine weitere Beobachtung dieser Aktivität in der belebten und unbelebten Natur wäre von großem Interesse.

β- und γ-Spektroskopie der Staubproben

Die chemische Zusammensetzung der langlebigen Aktivität des atmosphärischen Aerosols wurde von uns durch β- und γ-Spektroskopie mittels eines Einkanalszintillationsspektrometers ermittelt.

Einerseits wegen der größeren β-Aktivität der Proben, anderseits aber auch um grundsätzlich die Möglichkeit einer β-Spektroskopie von Staubproben sehr schwacher Aktivität bzw. einzelner „heißer Teilchen" (Aktivität $< 10^{-10}$ Curie) zu untersuchen, analysierten wir zunächst mittels eines Plastikszintillators (also auf β-Strahlung)[16]. Dabei ergab sich für ein einzelnes „heißes Teilchen" z. B. das in Abb. 6 wiedergegeben β-Speektrum. Die Schwierigkeiten der β-Spektroskopie liegen weniger in der Aufnahme der Kurve, als in der Zuordnung entsprechender Isotope zu der erhaltenen Energieverteilung. Bekanntlich ist das β-Spektrum, gegeben durch die statistische Verteilung der Elektronen verschiedener Energie, ein sogenanntes „kontinuierliches Spektrum", dessen Verlauf und Maximalenergie für das aussendende Isotop charakteristisch ist. Allerdings ist die Zahl der Elektronen mit Maximalenergie relativ gering, so daß sich die Kurve der x-Achse langsam nähert und die eindeutige Feststellung der Maximalenergie erschwert. Diese läßt sich jedoch durch Berechnung des „Fermi-Kurie-plots"

[16] F. HAUER u. G. KECK, Kolloquium über radioaktive Partikel.

erleichtern. Von KURIE, RICHARDSON und PAXTON[17] wurde die Anwendung der „Fermi-Funktion" F(Z, η) für die Analyse der β-Spektren gegeben. Eine ausführliche Darstellung mit tabellarischer Angabe der Zahlenwerte wurde vom National Bureau of Standards gegeben[18], eine Anwendung auf β-Spektren von GARDNER und MEINKE[19].

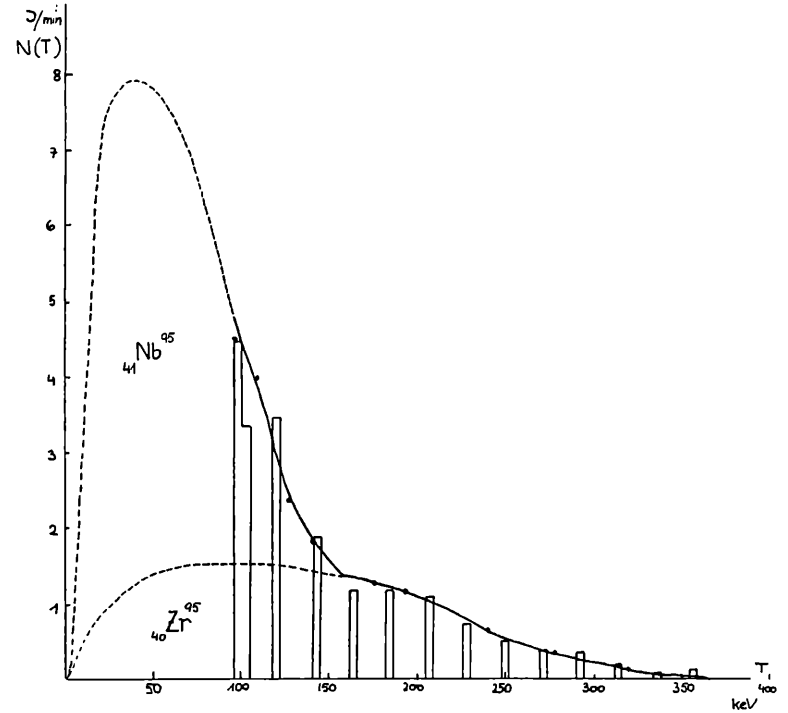


Abb. 6. Analyse des β-Spektrums des „heißen Teilchens" vom 29. X. 1959. Säulendarstellung: β-Szintillationsspektrum, analysiert am 4. XI. 1959 Gesamtstrahlung $< 10^{-10}$ Curie

Praktisch ergibt sich daraus, daß für den größten Teil der β-Spektren (die sogenannten „erlaubten Spektren") der Ausdruck

[17] Physical Rev. 49, 368 (1936).

[18] Tables for the Analysis of Beta Spectra. National Bureau of Standards, Applied Mathematics Series 13 (1952).

[19] D. G. GARDNER and W. W. MEINKE, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1958, Vol. 3, pp. 232—239.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

$\sqrt{\frac{N(\eta)}{\eta^2 F(Z,\eta)}}$ als Funktion der Energie der Elektronen (T) eine Gerade ergibt, (den „Fermi-Kurie-plot") die die x-Achse (Kinetische Energie der Elektronen) bei der Maximalenergie T_0 schneidet. Dabei bedeutet Z die Atomzahl des entsprechenden Isotops, $\eta = \frac{p}{mc}$, wobei p das mechanische Moment der Elektronen, m die Masse der Elektronen und c die Lichtgeschwindigkeit ist. η hängt mit der kinetischen Energie T der Elektronen (in keV gegeben) durch die Beziehung $\mu = \sqrt{\left(1 + \frac{T}{510,91}\right)^2 - 1}$ zusammen.

η und $\eta^2 F(Z,\eta)$ sind als Funktionen von T für alle Isotopen in [18] tabellenmäßig angegeben, so daß aus dem β-Spektrum eines bestimmten Isotops der Atomzahl Z die Werte N(T) (das ist die Anzahl der mit bestimmter Energie ausgesandten Elektronen) entnommen werden können und daraus der „Fermi-Kurie-plot" berechnet und gezeichnet werden kann.

Bei der β-Analyse eines „heißen Teilchens" ist allerdings nicht das β-Spektrum einer bestimmten bekannten Substanz gegeben, dessen Maximalenergie bestimmt werden soll, sondern es sollen aus den (unsicher) gegebenen Maximalenergien der experimentell gefundenen Energieverteilung alle in der Probe vorhandenen Isotopen festgestellt werden. Zu diesem Zwecke gingen wir vor, wie in Beispiel 1 gezeigt wird.

Beispiel 1: Abb. 6 (Säulendarstellung) zeigt das mit dem Plastikszintillator aufgenommene β-Spektrum eines einzelnen „heißen Teilchens", abgefiltert am 29. X. 1959. Das Teilchen hat eine Gesamtstrahlungsintensität $< 10^{-10}$ Curie. Wir bestimmten aus Kurve 6 zunächst den Bereich der Maximalenergie der härtesten Komponente der β-Strahlung bei etwa 350 keV und stellten aus „Table of Isotopes"[20] die mit dieser Maximalenergie in Frage kommenden Isotope fest. Für diese berechneten wir mittels der aus Kurve 6 entnommenen N(T)-Werte den „Fermi-Kurie-plot" Lediglich für Zr_{40}^{95} ergab sich eine Gerade, die die x-Achse bei einem Energiewert von 370 keV erreichte, wodurch die Anwesenheit von Zr_{40}^{95} in der Probe gesichert ist. Die Berechnung des „Kurie-plots" ergibt allerdings nur für Energiewerte > 160 keV eine Gerade. Von diesem Wert (gegen kleineres T) an zeigt auch die Kurve 7 einen wesentlich steileren Anstieg. Wir nahmen daher an, daß sich

[20] J. H. HOLLANDER, I. PERLMAN, and G. T. SEABORG, Reviews of modern physics, Vol. 25, 2, April 1953.

bei kleineren KeV-Werten die β-Strahlung eines anderen Elementes überlagert, deren Maximalenergie im Bereich von 160 keV liegt. Zunächst bestimmten wir aber noch nicht dieses weitere Isotop, sondern setzten den „Kurie-plot" (Abb. 7) von Zr_{40}^{95} als Gerade bis 0 keV fort (strichlierte Linie in Abb. 7) und berechneten nun

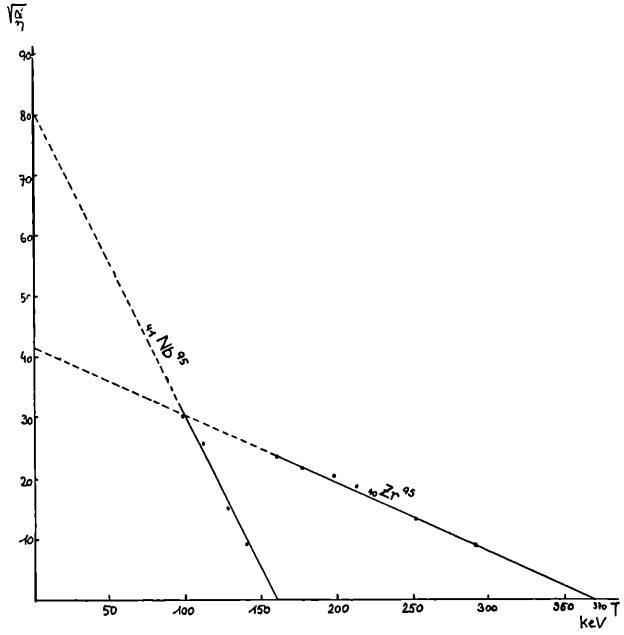


Abb. 7. „Fermi-Kurie-plot" von Zr_{40}^{95} und Nb_{41}^{95}, erhalten aus Abb. 6

umgekehrt daraus den gesamten Verlauf der Energieverteilung des β-Spektrums von Zr_{40}^{95}. Abb. 6 gibt in ausgezogener Linie den experimentell gefundenen Anteil des β-Spektrums von Zr_{40}^{95}, in gestrichelter Linie den berechneten Anteil. Die Analyse des Restanteiles des Spektrums ist dadurch wesentlich vereinfacht, da nun von den experimentell gefundenen Werten N(T) für Energien kleiner 160 keV die N_{Zr} (T)-Werte für Zirkon abgezogen werden konnten. Die Restkurve wurde wieder durch Berechnung des „Kurie-plots" für Isotope mit einer Maximalenergie im Bereich von 160 keV zu bestimmen versucht und es ergab sich als 2. Isotop des „heißen Teilchens" Nb_{41}^{95}, dessen „Kurie-plot" ebenfalls in

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

Abb. 7 eingezeichnet ist. Auch hier ergänzten wir wieder zu dem gesamten β-Spektrum, wie in Abb. 6 gezeigt wird. Diese beiden Isotope genügen, um die experimentell gefundene β-Verteilung (für Energien größer 100 keV) völlig zu analysieren. Das „heiße Teilchen" enthält demnach Zr_{40}^{95} und N_{41}^{95}. Aus dem Flächenverhältnis F_{Zr}/F_{Nb} zwischen den beiden Kurven und der x-Achse läßt sich einfach das Mengenverhältnis der beiden Isotope im „heißen Teilchen" angeben.

Aus $\frac{dn}{dt} = \frac{0{,}693}{\tau} n$ und $\frac{dn}{dt} = \text{const.}\, F$ — n Anzahl der aktiven Atome, τ Halbwertszeit

ergibt sich:

$\frac{F_{Zr} \cdot \tau_{Zr}}{F_{Nb} \cdot \tau_{Nb}} = \frac{n_{Zr}}{n_{Nb}}$ oder durch Multiplikation mit den Atomgewichten A erhält man das Mengenverhältnis m_{Zr}/m_{Nb} der aktiven Bestandteile der Probe mit: $F_{Zr} \cdot \tau_{Zr} \cdot A_{Zr}/F_{Nb} \cdot \tau_{Nb} \cdot A_{Nb} = m_{Zr}/m_{Nb}$.

Für unser Beispiel ergibt sich ein Mengenverhältnis

$$m_{Zr}/m_{Nb} = 1/1$$

Beispiel 2: Abbildung 8 gibt das β-Szintillationsspektrum eines „heißen Teilchens", abgefiltert am 28. IV. 1958. Hier konnte das β-Spektrum durch Überlagerung der Strahlung von Zr_{40}^{95}, Ru_{44}^{103} und Nb_{41}^{95} (allerdings nicht vollständig) erklärt werden. Eine härtere Restkomponente konnte wegen ihrer geringen Intensität keinem Isotop zugeordnet werden. Abb. 9 gibt die zu Abb. 8 gehörigen „Kurie-plots". Auch hier wurde das Mengenverhältnis von Zr, Ru und Nb berechnet und egab: $m_{Zr}/m_{Ru}/m_{Nb} = 1/1{,}2/1{,}7$.

Beispiel 3: Abb. 10 gibt das β-Spektrum des Staubes eines gesamten Filters (angesaugt am 1. V. 1959) wieder. Hier ist es uns nicht gelungen, eine eindeutige Zuordnung zu einzelnen Elementen zu finden. Die Staubprobe dürfte Zr_{40}^{95}, Ru_{44}^{103}, Nb_{41}^{95}, Cer^{141}, Cer^{144} und noch weitere β-Strahler enthalten, doch ist eine eindeutige Auflösung bei einer so großen Anzahl von Isotopen sehr schwer möglich. Bei einem anderen Gesamtfilter (23. III. 1958) ergab sich ein ähnliches Bild.

In Übereinstimmung mit anderen Autoren (SITTKUS[21], [22], SCHULZ und KOLB[23]) zeigen die im vorherigen gegebenen Beispiele,

[21] A. SITTKUS, Naturwissenschaften 46, Heft 12, 1959, 399.

[22] A. SITTKUS, Sonderausschuß Radioaktivität, Kolloquium über radioaktive Partikel, Seite 99.

[23] H. D. SCHULZ und W. KOLB, Sonderausschuß Radioaktivität, Kolloquium über radioaktive Partikel, Seite 91.

Abb. 8. β-Szintillationsspektrum eines „heißen Teilchens", abgefiltert am 28. IV. 1958, analysiert im Oktober 1958. Die Aktivität betrug 3.10^{-10} Curie. (Die Stufenkurve gibt auch hier wieder die in den einzelnen Kanälen experimentell erhaltenen Werte an, die Kurven zeigen die Analyse.)

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

daß sich die chemische Zusammensetzung von „heißen Teilchen" und von Staubproben, die viele schwachaktive Teilchen enthalten, voneinander unterscheiden, in dem Sinne, daß das „heiße Teilchen" nicht alle Elemente enthält, die in Spaltproduktgemischen vorkommen.

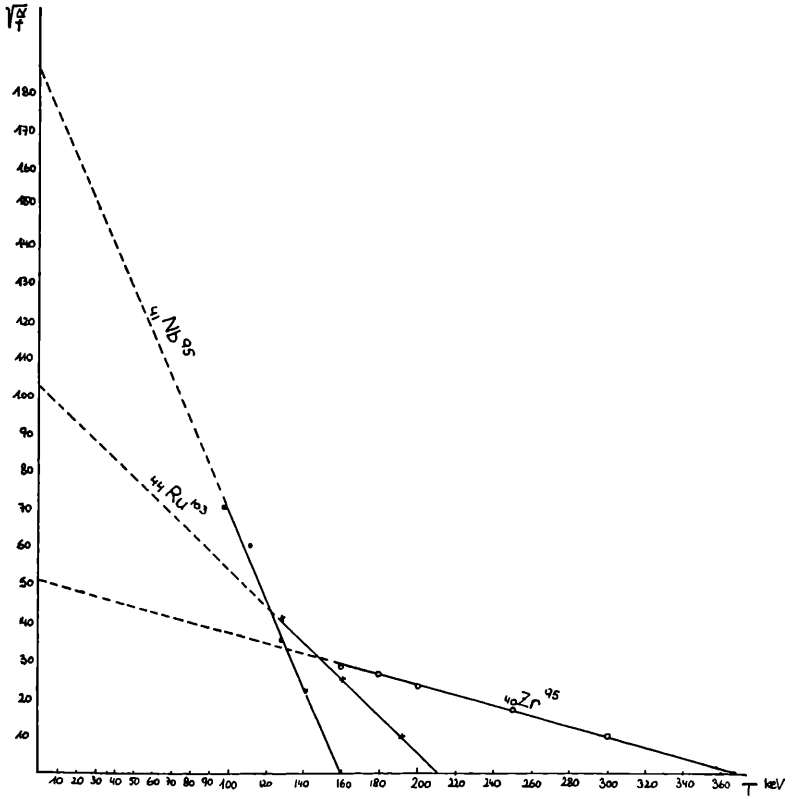


Abb. 9. „Fermi-Kurie-plot" von Zr^{95}_{40}, Ru^{103}_{44} und Nb^{95}_{41}, erhalten aus experimenteller Kurve von Abb. 10.

Zusammenfassend läßt sich über die β-Spektroskopie von Staubproben sagen, daß diese, wenn auch nicht in allen Fällen, so doch oft möglich ist und eine wertvolle Ergänzung zu γ-Strahlenanalysen darstellt.

Von den in der üblichen Weise mit einem Bohrlochkristall durchgeführten γ-Strahlenanalysen zeigt Abb. 11 das Gamma-Szintillationsspektrum einer Staubprobe, gesammelt vom 6. bis 8. VIII. 1959 auf dem Jungfraujoch und analysiert Ende September 1959. Es ergeben sich auch bei der Staubprobe, die in größerer Höhe gesammelt wurde, die 3 charakteristischen Photopeaks bei 145 keV, 490 keV und 750 keV, die den Spaltprodukten Cer^{141} und Cer^{144} (145 keV), $Ruthenium^{103}$ (490 keV) und $Zirkon^{95}$ und $Niob^{95}$

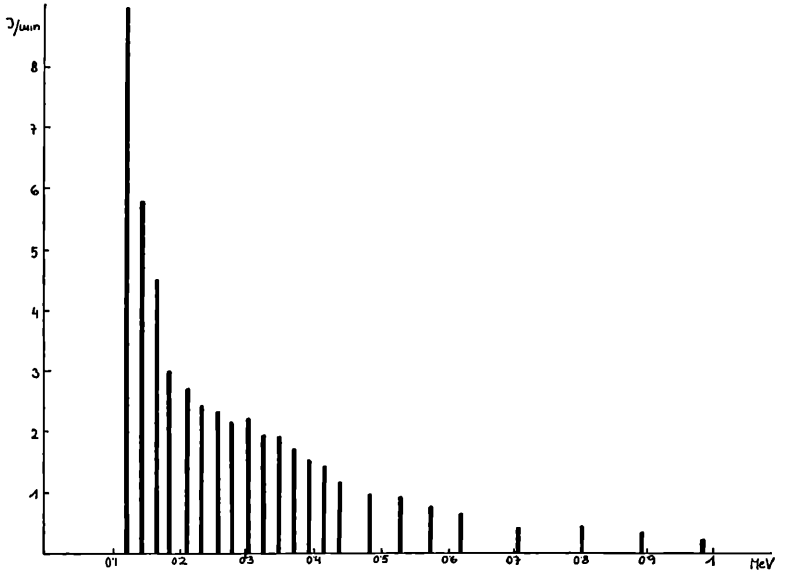


Abb. 10. β-Szintillationspektrum eines gesamten beaufschlagten Filters, angesaugt am 1. V. 1959, analysiert am 11. bis 15. V. 1959.

(750 keV) zugeordnet werden können. Dieselben Spektren wurden für Staub aus dem Raum von Wien auch von Schönfeld, Liebscher, Karl und Friedmann[24] gemessen und auch an anderen Stellen[25] gefunden. Die Zusammensetzung des Staubes auf dem Jungfraujoch ist die gleiche wie in tieferen Schichten. Abb. 12 zeigt

[24] Schönfeld T., Liebscher K., Karl F., Friedmann Ch., Nature, Vol. 185, No. 4707, pp. 192—193, January 1960.

[25] Sonderausschuß Radioaktivität, Kolloquium über radioaktive Partikel.

©Akademie d. Wissenschaften Wien; download unter www.biologiezentrum.at

schließlich noch das γ-Szintillationsspektrum einer Staubprobe, die erst 18 Monate nach der Atombombenexplosion, von der sie herrührt, analysiert wurde (Atombombenexplosion Anfang Okto-

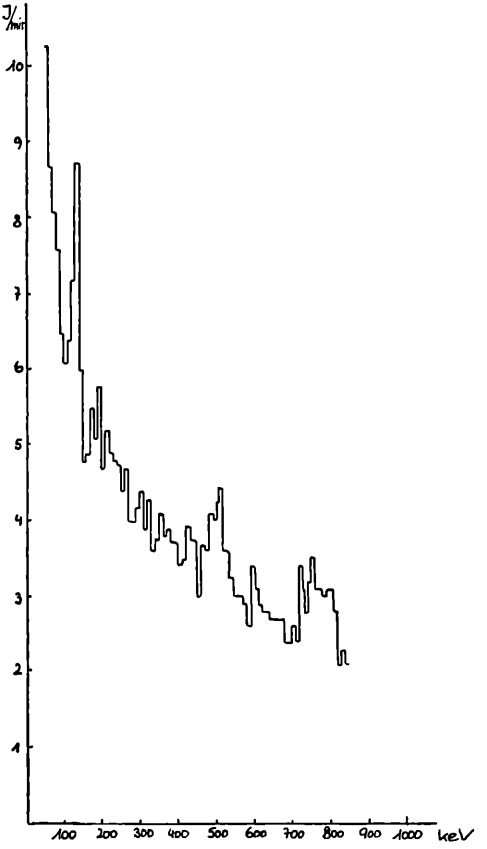


Abb. 11. γ-Szintillationsspektrum einer Staubprobe, gesammelt auf der „Hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch" 3540 m (angesaugt 6. bis 8. August 1959, analysiert Ende September 1959).

ber 1958, Sammeldatum der Probe Anfang Mai 1959, Analyse Ende März 1960). Der Photopeak von 145 keV ist noch immer nachweisbar und wird vor allem Cer^{144} zugeordnet werden können

(Halbwertszeit von Cer^{144} beträgt 282 Tage). Cer^{144} muß demnach auch heute noch in der Natur vorhanden sein, obwohl, wie aus dem vorhergehenden ersichtlich ist, die Ausscheidung langlebiger Akti-

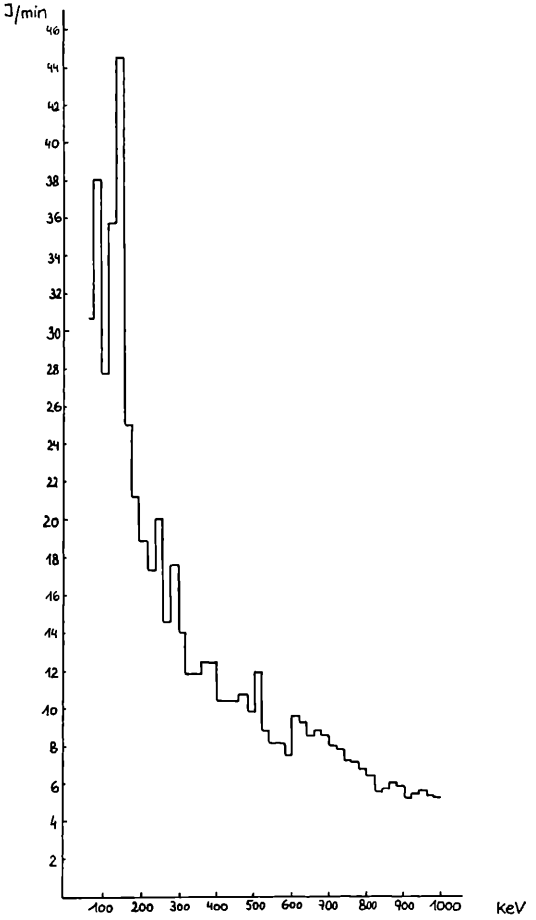


Abb. 12. γ-Szintillationsspektrum einer Staubprobe, gesammelt Anfang Mai 1959 auf dem Leopoldsberg, analysiert März 1960.

vität aus der Atmosphäre in den letzten Monaten fast auf Null abgesunken ist.